

РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ

(19) RU (11) **2 646 549** (13) C1

ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА  
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ  
(51) МПК  
[G01T 1/02 \(2006.01\)](#)

## (12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

Статус: действует (последнее изменение статуса: 27.02.2019)  
Пошлина: учтена за 4 год с 19.01.2020 по 18.01.2021

(21)(22) Заявка: [2017101640](#), 18.01.2017(24) Дата начала отсчета срока действия патента:  
18.01.2017Дата регистрации:  
05.03.2018Приоритет(ы):  
(22) Дата подачи заявки: 18.01.2017(45) Опубликовано: [05.03.2018](#) Бюл. № 7

(56) Список документов, цитированных в отчете о  
поиске: **Toward High Sensitivity ESR  
Dosimetry of Mammal Teeth: The Effect of  
Chemical Treatment, J. Radiat. Res., 47,  
Suppl., A71-A74 (2006). RU 3384 U1,  
16.01.1997. WO 2010122546 A1, 28.10.2010.  
WO 2011094234 A2, 04.08.2011.**

Адрес для переписки:  
**620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19,  
УрФУ, Центр интеллектуальной  
собственности, Маркс Т.В.**

(72) Автор(ы):

**Байтимиров Дамир Рафисович (RU),  
Иванов Денис Владимирович (RU),  
Конев Сергей Федорович (RU),  
Мазуренко Владимир Гаврилович (RU),  
Конев Александр Сергеевич (RU)**

(73) Патентообладатель(и):

**Российская Федерация, от имени которой  
выступает Государственная корпорация  
по атомной энергии "Росатом" (RU),  
Федеральное государственное автономное  
образовательное учреждение высшего  
образования "Уральский федеральный  
университет имени первого Президента  
России Б.Н. Ельцина" (RU)**

## (54) Материал датчика для эпр дозиметрии ионизирующих излучений

## (57) Реферат:

Изобретение относится к области биосовместимых эпр датчиков дозиметра накопленной дозы ионизирующих излучений (ИИ). Материал датчика для эпр дозиметрии ионизирующих излучений на основе зубной эмали животного, отличающийся тем, что содержит пробу эмали зуба свиньи и дополнительно связующее и парамагнитное вещества при следующих количественных соотношениях, мас. %:

проба зубной эмали свиньи  
связующее вещество  
парамагнитное вещество

80-87  
12,9-19,8  
0,1-0,2,

при этом в качестве пробы зубной эмали свиньи используют порошок с размерами крупинок от 0,1 мм до 0,3 мм. Технический результат – увеличение чувствительности

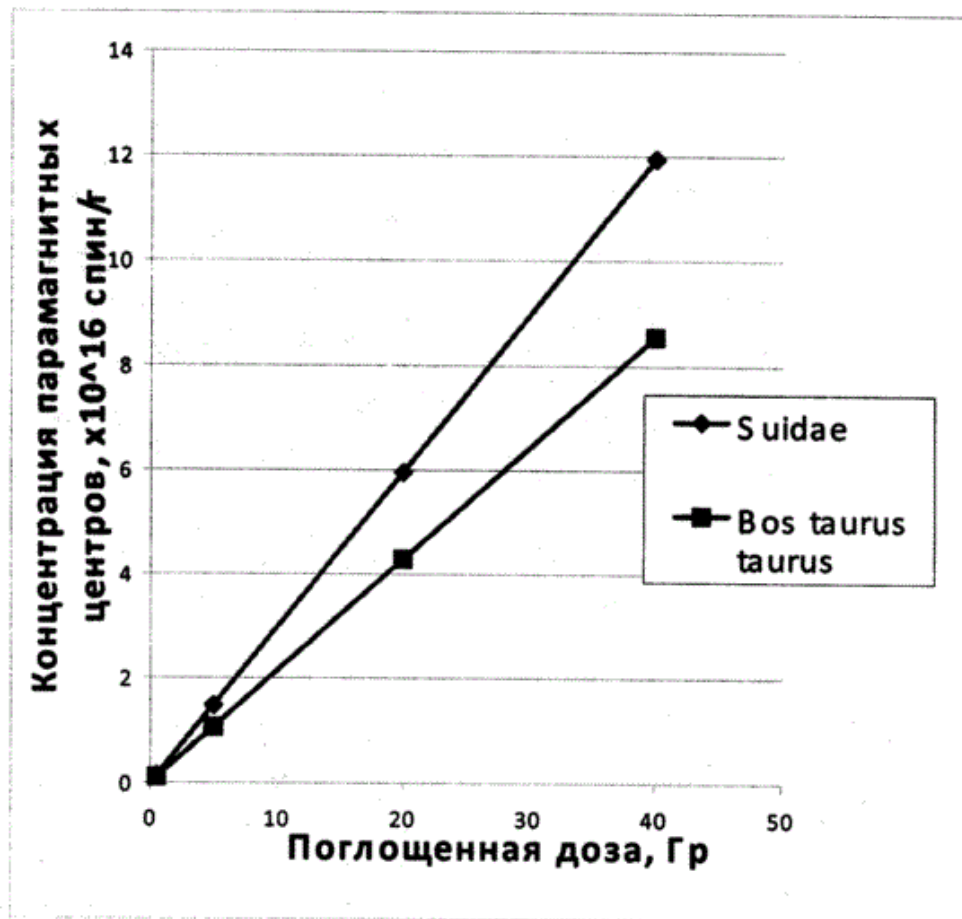


Рис.1

Изобретение относится к области биосовместимых датчиков дозиметра накопленной дозы ионизирующих излучений (ИИ) и может найти применение при решении технических задач, связанных с использованием ионизирующего излучения в атомной промышленности для контроля облучения персонала, в дефектоскопии, в целях калибровки медицинских пучков, используемых в радиотерапии, в биомедицинских исследованиях и др. Актуальность промышленного производства биосовместимого детектора ИИ очень высока. При экологических исследованиях радиоактивно загрязненных территорий его уникальные свойства обеспечат возможность исследований *in-vivo*, когда дозиметр внедряется в организм животного и накапливает дозу, которую получает живой организм, обитая в естественных условиях. В медицине при проведении радиотерапии такие датчики могут обеспечить контроль над облучением. Основой биосовместимого датчика является биологический гидроксиапатит (зубная эмаль животного). В процессе формирования гидроксиапатита (минеральной компоненты кальцинированных тканей) в его кристаллическую решетку внедряются карбонатные примеси. Под действием ионизирующего излучения примеси карбоната переходят в стабильные свободные радикалы  $\text{CO}_2^-$ . Концентрация радикалов  $\text{CO}_2^-$  растет линейно с увеличением накопленной дозы ИИ в широком диапазоне доз. Концентрация свободных радикалов измеряется на спектрометре электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) и таким образом определяется накопленная доза. Метод электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) позволяет использовать биологический гидроксиапатит для ретроспективной оценки индивидуальной дозы.

Биоапатит представляет собой альтернативу аланиновым ЭПР-дозиметрам и термолюминесцентным датчикам. Аминокислота аланин позволяет определять минимальные дозы 0,3-0,5 Гр [2] в то время, как нижний предел реконструируемой по зубной эмали дозы составляет сотые доли Грей. Преимущество биоапатита перед термолюминесцентными датчиками заключается в возможности многократного считывания с него информации о поглощенной дозе, и он не подвержен воздействию влажности и света при хранении.

Известен материал для термолюминесцентного детектора ультрафиолетового излучения (патент №2054186). Но такой твердотельный детектор не чувствителен к

более жесткому излучению (рентген, гамма и др.).

Известен датчик на основе зубной эмали для дозиметрии ионизирующих излучений, выполненный в виде пластинки, вырезанной из эмали зуба человека [1]. Датчик позволяет получать методом ЭПР детальную информацию о характере радиационного поражения человеческого организма, которому принадлежал зуб.

Недостатком датчика является сложность получения достаточного большого количества пластинок для организации серийного изготовления датчиков поглощенной дозы индивидуальных организмов.

Известен датчик на основе зубной эмали человека для дозиметрии ионизирующих излучений, представляющий собой пробу зубной эмали в порошкообразном состоянии весом 45-55 мг с размерами зерен 0,5-1,5 мм [2].

Недостатком датчика является необходимость получения порционных развесок, сложность получения достаточного количества порошка зубной эмали человека для организации серийного изготовления датчиков.

Известен материал для дозиметрии ионизирующих излучений в виде порций развесок порошков из эмали зубов мыши, собаки, моржа [3], при этом чувствительность такого материала недостаточна для создания датчика. Так чувствительность материала из эмали мышей составляет 30-50% чувствительности эмали зубов людей, тогда как чувствительность излучения датчиков из резцов коровы сопоставима с чувствительностью человеческой зубной эмали.

Из недостатков указанных материалов можно указать на невозможность серийного изготовления, при работе с таким материалов имеет место большая ошибка в определении дозы и неудобство работы с порошком.

Известен материал для датчика [4], взятый нами за прототип, используется для дозиметрии ионизирующих излучений в виде порции порошка из эмали зубов коровы (*Bos taurus taurus*) весом 150 мг с зернами размером 0,5-1,0 мм. Недостатками датчика являются меньшая чувствительность, чем материал из эмали человеческого зуба, неудобство использования порошка как конечной формы датчика и ошибка в определении дозы, связанная с влиянием влажности материала на результаты ЭПР измерений. При большом размере кристаллов порошка 0,5-1 мм сильно проявляется анизотропия биоапатита, что приводит к неоднозначности результатов и требуется многократное повторение измерений. Также имеет место большой разброс параметров исходного материала, полученного из зубной эмали коров различных особей, что снижает точность измерений и увеличивает время и трудоемкость измерений из-за необходимости проводить процедуру усреднения.

Задачей изобретения является увеличение чувствительности материала к ИИ, повышение удобства пользования, уменьшение влияния анизотропии, влажности и различия в свойствах исходного материала от различных особей, и пригодность материала для крупносерийного изготовления датчиков.

Указанная задача решается за счет того, что в качестве зубной эмали берется порошок эмали зубов свиньи с размером зерен 0,1-0,3 мм, имеющий более высокую чувствительность и ничтожно малую анизотропию. Порошок эмали заключен в твердую форму из связующего, содержащую для контроля влажности целевую добавку, в качестве которой используется парамагнитное вещество. Проба зубной эмали свиньи, связующее и парамагнитное вещество используют при следующих соотношениях, мас. %:

Проба зубной эмали свиньи	80-87
Связующее	12,9-19,8
Парамагнитное вещество	0,1-0,2

Для подтверждения указанных существенных отличий нашего изобретения от прототипа были приготовлены 80 проб разных материалов. Сорок проб из зубов *Suidae* (свиньи) крупной фракции 0,5-1 мм и сорок из мелкой 0,1-0,3 мм. Аналогичное количество 80 проб эмали из зубов животных *Bos taurus taurus* (коровы). Размер выборки каждой партии по десять проб. Выборочные результаты измерений помещены в таблицах №1-№4. Пробы имели равные массы и были предварительно высушены. Изготовлены детекторы размерами 5,5×7 мм. В качестве связующего была использована эпоксидная смола. Плотность детекторов составила ~1200 кг/м<sup>3</sup>, что близко к плотности воды и живой ткани. Результаты представлены в таблицах. Усредненные значения концентрации парамагнитных центров при разной дозе ИИ (см. таб. №1 и №2) в датчиках из эмали *Suidae* (свиньи) и *Bos taurus taurus* (коровы) и среднеквадратические отклонения, указывают на существенно большую чувствительность и значительно меньший разброс значений для вещества *Suidae*, чем для *Bos taurus taurus* (см. табл. №3). По результатам воздействия ИИ на детекторы при

разной приобретенной дозе построена калибровочная зависимость, по которой любой детектор данной партии может быть откалиброван (см. Рис. 1 - сравнение радиационных чувствительностей).

**ТАБЛИЦА №1**

Концентрация парамагнитных центров, возникших при радиационном облучении зубной эмали нескольких особей типа *Suidae*, по данным ЭПР

Suidae(мелкая фракция)	ДОЗА при облучении электронами энергией 10Мэв			
	0,5 Грей	5 Грей	20 Грей	40 Грей
№	Концентрация ПМЦ (*10 <sup>16</sup> Спин/грамм)			
1	0,149	1,492	5,951	11,893
2	0,153	1,543	6,121	11,891
3	0,149	1,488	5,884	11,952
4	0,142	1,489	5,821	11,953
5	0,168	1,566	5,961	11,942
6	0,142	1,496	5,943	11,948
7	0,145	1,382	6,402	11,971
8	0,149	1,497	5,939	11,962
9	0,164	1,511	5,723	11,987
10	0,137	1,338	5,774	11,875
<b>Среднее</b>	<b>0,150</b>	<b>1,480</b>	<b>5,952</b>	<b>11,937</b>
<b>Ср.кв.откл.</b>	<b>0,009</b>	<b>0,066</b>	<b>0,184</b>	<b>0,036</b>

**ТАБЛИЦА №2**

Концентрация парамагнитных центров, возникших при радиационном облучении зубной эмали нескольких особей типа *Bos taurus taurus*, по данным ЭПР

Bos taurus taurus (мелкая фракция)	ДОЗА при облучении электронами энергией 10Мэв			
	0,5 Грей	5 Грей	20 Грей	40 Грей
	Концентрация ПМЦ (*10 <sup>16</sup> Спин/грамм)			
<b>Среднее</b>	<b>0,107</b>	<b>1,070</b>	<b>4,273</b>	<b>8,551</b>
<b>Ср.кв.откл.</b>	<b>0,012</b>	<b>0,102</b>	<b>0,231</b>	<b>0,057</b>

**ТАБЛИЦА №3**

Интенсивность ЭПР сигнала от датчиков из зубной эмали животных *Suidae* и *Bos taurus taurus* при одной и той же дозе облучения

Доза (Грей)	Suidae	Bos taurus taurus
0	0	0
0,5	0,1485	0,107
5	1,485	1,07
20	5,94	4,28
40	11,88	8,56
1000	297	214
2000	594	428

Размер частичек порошка 0,1-0,3 мм (мелкая фракция) значительно уменьшает влияние анизотропии за счет лучшего усреднения. Для мелкой фракции (0,1-0,3 мм) отклонение от среднего в выборке значительно меньше, чем отклонение для крупной фракции (0,5-1,0 мм) во всем диапазоне доз ИИ, наблюдаемых в опыте (см. табл. №4).

**ТАБЛИЦА №4**

Среднеквадратические отклонения интенсивности сигнала ЭПР для мелкой и крупной фракций зубной эмали *Suidae*

Suidae	Ср.кв.откл. *10 <sup>16</sup> спин/грамм	
Доза (Грей)	мелкая фр. 0,1-0,3мм	крупная фр. 0,5-1мм
0,5	0,009	0,018
5	0,066	0,117
20	0,184	0,215
40	0,036	0,071

Зубные ткани коров гораздо крупнее, чем у свиней, и требуют большего времени и трудозатрат. Следовательно, с точки зрения уменьшения трудозатрат на серийное изготовление, зубные ткани свиней как источник дозиметрического материала оказываются предпочтительней.

Проверен ряд веществ на предмет воздействия на них ИИ, которые могут выступать в качестве связующих. При мощности электронного облучения 10 МэВ приобретенная доза этими веществами составляла 150 кГрей. Результаты такой проверки размещены в таблице №5. Как показали измерения, минимальное воздействие ИИ оказало на эпоксидную смолу, силикатный клей и на стоматологический пломбировочный цемент 1К. При таком воздействии ИИ мелкая фракция *Suidae* показала интенсивность сигнала ЭПР 168,02 отн. ед., в то время как эпоксидная смола равного веса показала реакцию на облучение величиной 0,31 отн. ед. Это в 542 раз меньше, чем воздействие ИИ на эмаль зуба *Suidae*.

**ТАБЛИЦА №5** Результат воздействия ионизирующего излучения  
на некоторые связующие вещества (доза 150кГрей)

ПАРАМЕТРЫ СПЕКТРА ЭПР				
	Ширина Гс	Интенсив отн.ед. пик-пик	g-фактор	пики
<i>Suidae</i> мелкая фракция 0,1-0,3мм	11,783	168,02	2,00270	1
Силикатный клей	23,009	0,11	2,00870	1
Клей КМЦ	29,452	26,45	2,00185	1
Крахмал	23,471	18,05	2,00513	1
Парафин	24,405	7,89	2,00528	1
Эпоксидная смола	23,915	0,31	2,00530	1
1К пломбировочный цемент	41,134	0,36	2,00759	2

Для уменьшения ошибки при определении приобретенной дозы датчиком на основе зубной эмали контролируют влияние на спектр ЭПР влажности и других факторов, влияющих на добротность резонатора спектрометра ЭПР. Контроль за добротностью позволяет калибровать значение интенсивности парамагнитного поглощения от зубной эмали. Это осуществляют с помощью парамагнитного вещества с известным спектром ЭПР, который не влияет на спектр зубной эмали. В качестве такого парамагнитного вещества нами взят парамагнитный репер ZnS (сульфид серы) с включениями в структуру Mn<sup>2+</sup>. Интенсивность спектра этого парамагнитного вещества не зависит от ИИ, пики располагаются в стороне от основного сигнала эмали, что позволяет учитывать изменение добротности резонатора при расчете дозы ИИ. Значительное уменьшение разброса показаний при использовании порошка эмали зубов свиньи *Suidae* с размерами частиц 0,1-0,3 мм. Кроме того, в отличие от развески в виде порошка, компоновка в таблетку дополнительно уменьшает различие значений измеренных доз для датчиков, полученных из зубной эмали животных различных экземпляров за счет закрепления ориентации крупинок порошка в таблетке. Зубная эмаль в основном состоит из анизотропного минерала гидроксиапатита, поэтому имеет место зависимость спектра эпр от ориентации крупинок. С уменьшением размеров частиц их число увеличивается в том же объеме и усреднение сигнала эпр происходит более качественно. Различные порции порошка, имеющие разную остаточную влажность, при снятии ЭПР спектра сильно меняют добротность резонатора, что приводит к ошибке измерения. Для уменьшения такой ошибки в материал датчика внедряют парамагнитное вещество (репер). Необходимо для каждой порции осуществлять контроль чувствительности спектрометра ЭПР с помощью этого парамагнитного репера.

Технический результат заключается в расширении арсенала материалов для датчиков эпр дозиметрии ИИ, что позволит производить указанные датчики в промышленных масштабах.

#### СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Пространственное распределение радиационных дефектов в эмали зуба, Физика твердого тела, 1999, том 41, выпуск 7, стр. 1207-1209.
2. Патент РФ 2298812.

3. EPR dosimetry with tooth enamel: A review, Applied radiation and isotopes, 2010, 68, стр. 2033-2116.

4. Toward High Sensitivity ESR Dosimetry of Mammal Teeth: The Effect of Chemical Treatment, J. Radiat. Res., 2006, 47, Suppl., A71-A74.

#### Формула изобретения

1. Материал датчика для эпр дозиметрии ионизирующих излучений на основе зубной эмали животного, отличающийся тем, что содержит пробу эмали зуба свиньи и дополнительно связующее и парамагнитное вещества при следующих количественных соотношениях, мас. %:

проба зубной эмали свиньи	80-87
связующее вещество	12,9-19,8
парамагнитное вещество	0,1-0,2,

при этом в качестве пробы зубной эмали свиньи используют порошок с размерами крупинок от 0,1 мм до 0,3 мм.

2. Материал датчика по п. 1, отличающийся тем, что в качестве связующего вещества используют эпоксидную смолу.

3. Материал датчика по п. 1, отличающийся тем, что в качестве парамагнитного вещества используется стандартный образец ЭПР ( $Mn^{2+}$  в  $ZnS$  сульфиде серы).

4. Материал датчика по п. 1, отличающийся тем, что проба зубной эмали свиньи, связующее и парамагнитное вещества используют в виде однородной массы в форме цилиндра.

- 7 -

**Материал датчика для эпр дозиметрии  
ионизирующих излучений.**

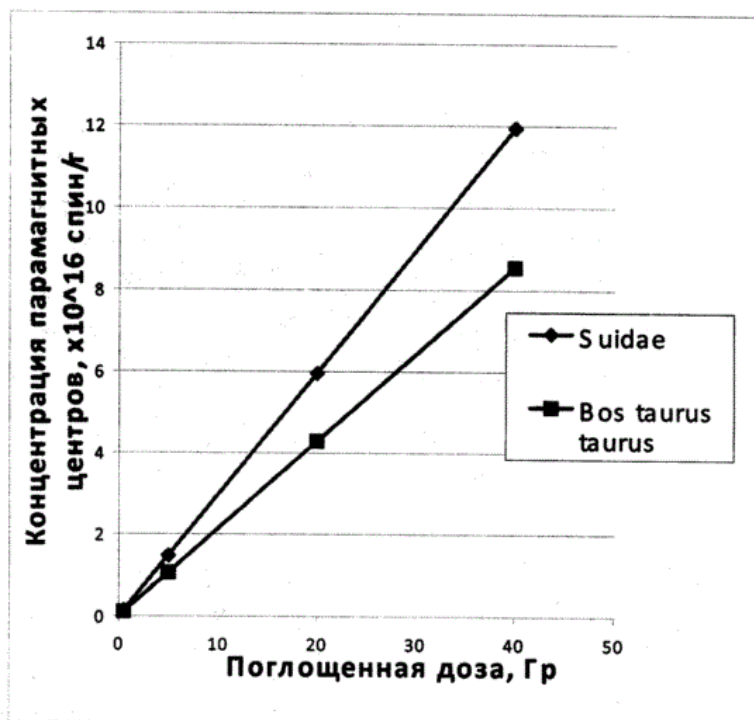


Рис 1.